

令和 4 年 6 月 5 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05231

研究課題名(和文)高キュリー点を持つ巨大圧電トランスデューサ薄膜の創製と圧電MEMSの性能限界打破

研究課題名(英文)Creation of Giant Piezoelectric Transducer Thin Film with High Curie Point and Breaking Performance Limit of Piezoelectric MEMS

研究代表者

吉田 慎哉 (Yoshida, Shinya)

東北大学・工学研究科・特任准教授

研究者番号：30509691

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、超高性能圧電MEMSアクチュエータの創出を目指し、巨大な圧電特性と高耐熱性とを両立する革新的な圧電薄膜の開発を行った。その材料の候補として、Sm添加マグネシウムニオブ酸鉛・チタン酸鉛(Sm-PMN-PT)の単結晶薄膜を検討した。スパッタ法によってSi基板上にバッファ層を介してSm-PMN-PTを堆積させた。その結果、理想的な結晶配向性と相からなる単結晶薄膜のエピタキシャル成長に成功した。また、この膜が、一般的なチタン酸ジルコン酸鉛多結晶薄膜を超える圧電性能を発揮する可能性があることを実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

圧電性と耐熱性とのバランスがよいチタン酸ジルコン酸鉛(PZT)を用いた圧電MEMS(微小電気機械システム)アクチュエータは、既に産業的な成功をおさめている。しかし、PZTの性能の向上化は限界に達しつつあり、デバイス性能もこれにより制限されている。本研究では、その圧電性能と同等以上である新しい圧電薄膜の開発に成功した。これを実用化できれば、より高性能な圧電MEMSアクチュエータを創出できる可能性がある。また、我が国の企業に技術移転できれば、産業的にも貢献できる。

研究成果の概要(英文)：Aiming to create ultra-high performance piezoelectric MEMS actuators, we have developed innovative piezoelectric thin films that combine giant piezoelectric properties with high heat resistance. As a candidate material, a single-crystal thin film of Sm-doped lead magnesium niobate/lead titanate (Sm-PMN-PT) was investigated. Sm-PMN-PT was deposited on a Si substrate via a buffer layer by sputtering. As a result, we succeeded in epitaxial growth of the single-crystal thin film consisting of ideal crystal orientation and phase. It was also demonstrated that this film has the potential to exhibit piezoelectric performance that exceeds that of general lead zirconate titanate polycrystalline thin films.

研究分野：MEMS、微細加工学

キーワード：圧電MEMS スパッタ法 エピタキシャル成長 単結晶 アクチュエータ

1. 研究開始当初の背景

チタン酸ジルコン酸鉛 (PZT) (図1) やその派生材料の薄膜を利用した圧電 MEMS アクチュエータの研究開発は、今日まで盛んに行われており、この分野での我が国の学術研究力、および産業競争力は非常に高い。PZT-MEMS アクチュエータは、例えば、インクジェットプリンタヘッドやスピーカー、カメラのオートフォーカスレンズなど、様々な用途に応用されつつあり、産業的成功をおさめている。成膜技術や結晶配向性の制御技術を蓄積し、PZT の圧電性能を最大限に発揮させられたことが、この成功に大きく寄与したことは間違いない。

しかしながら、この性能向上化の限界は見えつつある。それはすなわち、圧電 MEMS アクチュエータの性能限界を意味する。PZT の性能が足りないゆえに実用化されていないものの代表は、マイクロミラーデバイスがある。その用途は、ピコプロジェクタ、ヘッドアップディスプレイ、網膜ディスプレイ、LIDAR、光スイッチなどと多岐に渡る。長きにわたりこれらの研究開発に産学官が多大な努力をしてきたが、依然、十分な性能が達成されず、実用化に至っていない。もし、PZT の性能を大きく上回る圧電薄膜を得て、それを MEMS に組み込めば、これまで実現できなかったデバイスを実現できる可能性がある。

実は、PZT を大きく上回る圧電性能を持つ材料は既に見出されている。例えば、 $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ - PbTiO_3 (PMN-PT) や $\text{PbZn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ - PbTiO_3 (PZN-PT) といったリラクサ系強誘電体単結晶である。しかし、これらは現在のところ用いられていない。その理由の一つは、理想的な結晶配向性や結晶相を有するリラクサ系強誘電体を、比較的厚くエピタキシャル成長させることが難しい点にある。また、キュリー点が低いことも課題である (例えば PMN-PT は 160 程度)。「大きな圧電性能を持つ材料のキュリー点は低くなる」というトレードオフ関係が存在することが知られている。このトレードオフ関係を打ち破らねば、PZT-MEMS アクチュエータを超えるものを創製できない。

2. 研究の目的

本研究では、申請者の見出した強誘電体単結晶薄膜のキュリー点変調技術を用いて、極めて大きな圧電性能を有しているにもかかわらず、バルクでは低キュリー点のリラクサ系強誘電体のキュリー点を引き上げる。これにより、巨大な圧電特性と高耐熱性とを両立する革新的な圧電薄膜を Si 基板上に形成する。そして、超高性能圧電 MEMS アクチュエータの実現可能性を実証する。

3. 研究の方法

本研究では、巨大な圧電性を持つ単結晶材料として、Sm 添加マグネシウムニオブ酸・チタン酸鉛 (Sm-PMN-PT) を研究した。これまで、PMN-PT 系単結晶薄膜が実用化されなかった理由は、PZT よりも成膜が難しい点にもある。巨大圧電性を発現させ、MEMS アクチュエータに使うには、ペロブスカイト相のみで構成される、結晶配向を (100) 単一配向にする、1~3 μm の膜厚を持つという 3 つの要件を同時に満たす薄膜を形成する必要がある。しかし、これを再現性よく成膜することは非常に難しい。本研究では、成膜実験を繰り返し、上記要件を満足する薄膜の形成法を探索した。得られた薄膜の配向性や結晶性などは、X 線回折や透過型電子顕微鏡などを用いて評価した。次に、実際の有用性を評価するために、圧電定数や絶縁破壊耐性などを評価した。さらに、単結晶薄膜の破壊靱性についても調査した。

4. 研究成果

研究初期においては、下地電極である SrRuO_3 上に直接 Sm-PMN-PT を堆積させた。しかし、プロセスウィンドウが狭く、パイロクロア相や (110) 配向などが頻りに形成された。そこで、PZT 極薄膜をバッファ層とすれば、それらの望まぬ結晶相や配向性を抑制できるのではないかと考え、試した。その結果、約 50 nm の PZT 極薄膜をシード層として敷き、その上に Sm-PMN-PT をエピタキシャル成長させることで、上記 3 要件を満たす Sm-PMN-PT 単結晶薄膜を比較的容易に得られることを発見した。図 2 に、透過型電子顕微鏡による Sm-PMN-PT 単結晶薄膜の断面観察像と電子線回折像を示す。断面観察像の薄膜には目立った結晶粒界は見られなかった。また、明瞭なスポットからなる電子線回折像が得られた。ゆえに、高結晶品質の Sm-PMN-PT 薄膜がエピタキシャル成長していることが実証された。

次に、カンチレバー法を用いて、この薄膜の圧電定数 $|e_{31,f}|$ を測定した (図 3 (上図))。その結果、最大で 20 C/m^2 に達した。これは、一般的な PZT 多結晶薄膜を超える値である。また、この

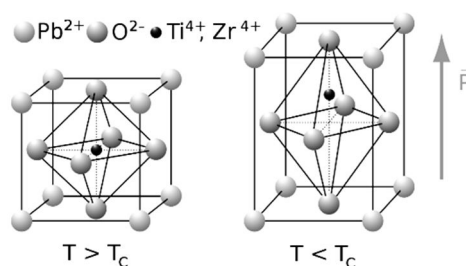


図1 PZT の結晶構造。キュリー点以下では分極し、比較的大きな圧電特性を示す。PZT に置き換わるアクチュエータ用圧電膜は、今のところ実現できていない。

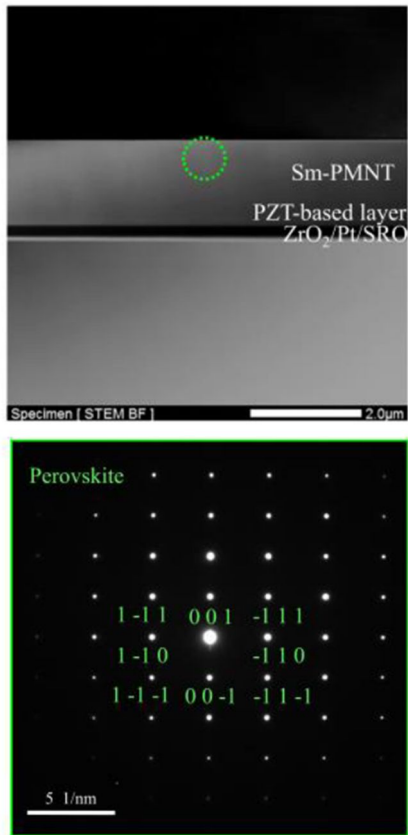


図2 (上)透過型電子顕微鏡による断面観察(下)上図の緑円の箇所の電子線回折像

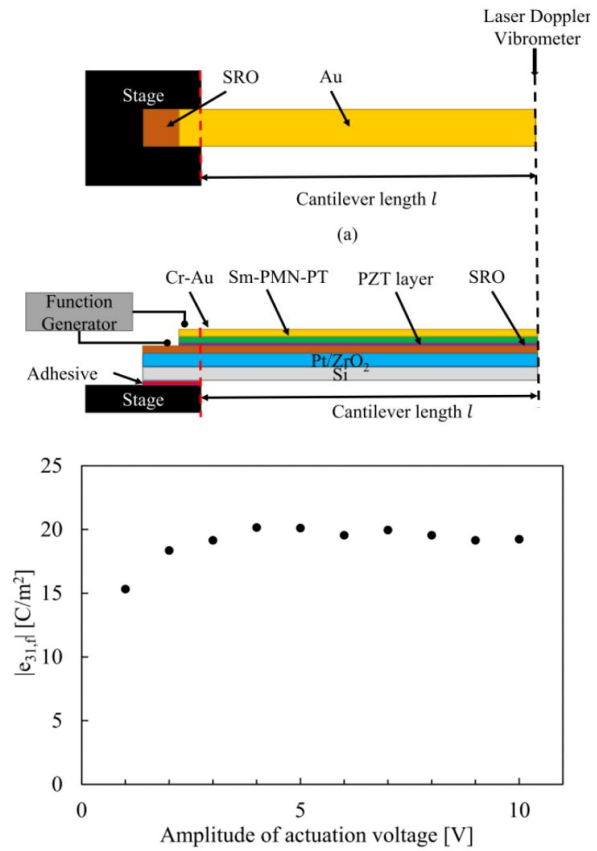


図3 (上)圧電カンチレバーの変位測定実験の概略図(下)圧電定数 $e_{31,f}$ の駆動電圧依存性

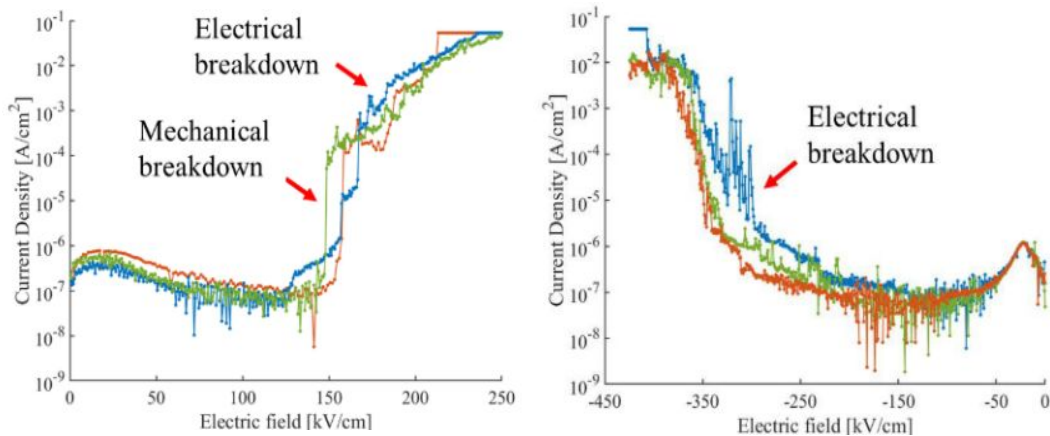


図4 厚さ $1.5 \mu\text{m}$ の Sm-PMN-PT/PZT 積層膜の電流密度の電界強度依存性。下部電極を接地。(a) 0 から正側に電界強度を増加した場合。(b) 負側に電界強度を増加した場合。異なる色の線は、異なる電極での測定結果に対応する。

値は、厳密に言えば、Sm-PMN-PT/PZT 積層薄膜に対しての値であり、研究対象である Sm-PMN-PT 薄膜自身ではない。そこで、もし PZT バッファ層への駆動電圧の分配がない場合をシミュレーションを用いて推定した。結果、Sm-PMN-PT 単結晶薄膜単体の潜在的な圧電性能は、 $|e_{31,f}| = 21 \sim 30 \text{ C/m}^2$ と巨大であることが示唆された。したがって、Sm-PMN-PT 単結晶薄膜は、期待通り、良好な圧電性能を有している可能性があることが見いだされた。組成最適化や分極処理でより一層の性能向上も見込める。

また、Sm-PMN-PT/PZT 積層薄膜の絶縁破壊耐性を評価した(図4)。図4(a)からわかるように、正電界を印可したとき、薄膜の絶縁破壊は多段階で起こることが読み取れた。まず、電界が $\sim 150 \text{ kV/cm}$ に達したとき、リーク電流密度が大幅に上昇した。この時、薄膜に亀裂が生じる「機械的破壊」が発生したことが確認された。続いて、 $\sim 170 \text{ kV/cm}$ にて、薄膜に放電が発生する「電

「電気的絶縁破壊」が始まり、最終的には ~ 220 kV/cmにて完全に短絡したことがわかった。一方、負の絶縁破壊電圧まで上昇させたときは図4(b) 機械的な破壊は発生せず、 ~ 300 kV/cmに達したときに電気的破壊が始まり、 ~ 400 kV/cmのときに完全に短絡した。以上の結果から、この薄膜は、負電圧モードでの動作では、極めて良好な絶縁耐性を持つことがわかった。正電圧と負電圧印加とで、絶縁破壊の挙動が異なる理由はまだよくわかっていないが、おそらくインプリント効果などに起因すると思われる。また、キュリー点を再現性良く測定するために、超高温環境下においても圧電特性や誘電率を測定できる装置を開発した。

そして、単結晶薄膜の破壊靱性についても調査した。ここでは、PZTの多結晶薄膜と単結晶薄膜を用いた。これらの薄膜表面に、ビッカース圧子を任意の荷重で押しつけ、インデンテーション試験を行った。図5は、単結晶薄膜へのインデンテーション試験の結果を示す。単結晶膜の結晶方位に沿って、亀裂が大きく進展していることがわかる。そして、実験の結果から、多結晶薄膜よりも単結晶薄膜の方が、亀裂が長くなることを確認した。すなわち単結晶薄膜の方が低靱性であった。これは、大きな歪が生じるMEMSアクチュエータ用途では、信頼性を低下させる主要因になりうる。仮に大きな圧電性能をもっている、すぐに機械的に壊れてしまえば使えない。Sm-PMN-PT単結晶薄膜においても、同様のことがいえるので、単結晶薄膜の性能を落とさずに、靱性を向上させる手段を見出す必要がある。これは今後の研究課題である。

上記の研究成果は、以下の～の学術論文として出版された。本成果は、巨大な圧電性能を持つMEMS用トランスデューサ薄膜を創出するための基盤的知見であり、超高性能圧電MEMSアクチュエータの実現のための大きな一歩であると自負している。

Shape of Vickers indenter

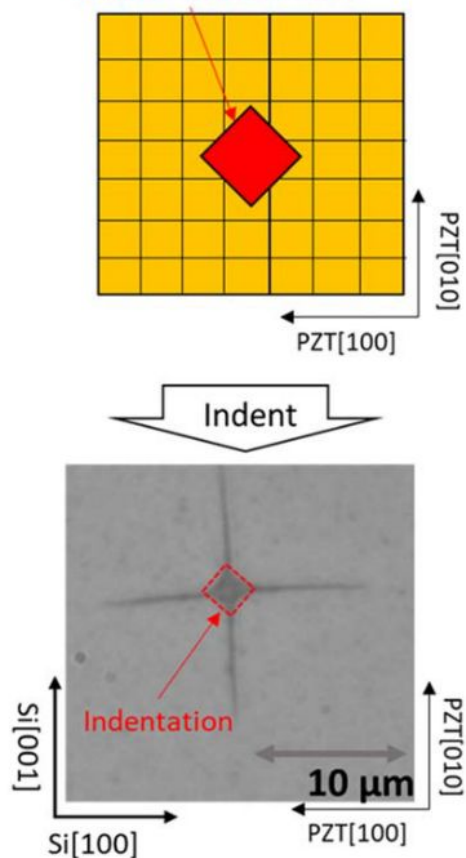


図5 PZT単結晶薄膜へのインデンテーション試験。上図は圧子の方向の設定。下図は試験後の亀裂観察像。

<引用文献>

X. Qi, S. Yoshida, and S. Tanaka, "Development of Sputter Epitaxy Technique of Pure-Perovskite (001)/(100)-Oriented Sm-Doped $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ on Si", *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control*, vol. 67, pp. 2738-2744, 2020, doi: 10.1109/TUFFC.2020.3011649.

X. Qi, S. Yoshida, and S. Tanaka, "Sputter Deposition and Characterization of Sm-Doped $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ Epitaxial Thin Film on Si toward Giant-Piezoelectric Thin Film for MEMS Actuator Application", *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control*, vol. 3010, pp. 1-1, 2022, doi: 10.1109/TUFFC.2022.3156881.

Y. Katsumata, S. Yoshida, and S. Tanaka, "Sputter deposition and characterization of 'epi-poly' $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ thin film on (100) Si substrate for MEMS applications", *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 60, p.101005, 2021, doi: 10.35848/1347-4065/ac262c.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Qi Xuanmeng, Yoshida Shinya, Tanaka Shuji	4. 巻 67
2. 論文標題 Development of Sputter Epitaxy Technique of Pure-Perovskite (001)/(100)-Oriented Sm-Doped Pb(Mg _{1/3} , Nb _{2/3})O ₃ PbTiO ₃ on Si	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control	6. 最初と最後の頁 2738 ~ 2744
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1109/TUFFC.2020.3011649	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Qi Xuanmeng, Yoshida Shinya, Tanaka Shuji	4. 巻 34
2. 論文標題 Sm-doped Pb(Mg _{1/3} , Nb _{2/3})O ₃ -PbTiO ₃ Sputter-Epitaxy on Si Towards Giant-Piezoelectric Thin Film for Mems	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Proceedings of 2021 IEEE 34th International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS)	6. 最初と最後の頁 654-657
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1109/MEMS51782.2021.9375393	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Katsumata Yu, Yoshida Shinya, Tanaka Shuji	4. 巻 60
2. 論文標題 Sputter deposition and characterization of “epi-poly” Pb(Zr, Ti) _{0.3} thin film on (100) Si substrate for MEMS applications	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 101005 ~ 101005
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac262c	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Xuanmeng Qi, Shinya Yoshida, Shuji Tanaka
2. 発表標題 Sm-doped Pb(Mg _{1/3} , Nb _{2/3})O ₃ -PbTiO ₃ Sputter-Epitaxy on Si Towards Giant-Piezoelectric Thin Film for MEMS
3. 学会等名 2021 IEEE 34th International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Xuanmeng Qi, Shinya Yoshida, Shuji Tanaka
2. 発表標題 Epitaxial Growth of Pure-Perovskite-Phase Sm-Doped Pb(Mg ₁ /3Nb ₂ /3) ₀₃ -PbTiO ₃ Thin Film on Si by Magnetron Sputter using Powder Target
3. 学会等名 Electroceramics XVII (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Xuanmeng Qi, Shinya Yoshida, Shuji Tanaka
2. 発表標題 Sputter-Epitaxy of Sm-Doped Pb(Mg ₁ /3, Nb ₂ /3) ₀₃ -PbTiO ₃ on Si for Creation of Giant-Piezoelectric MEMS Actuator
3. 学会等名 圧電材料・デバイスシンポジウム2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Qi Xuanmeng, 吉田 慎哉, 田中 秀治
2. 発表標題 Sputter Epitaxy of Sm-Doped Pb(Mg ₁ /3Nb ₂ /3) ₀₃ -PbTiO ₃ Thin Film on Si for High-performance Piezoelectric MEMS Actuator
3. 学会等名 第36回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Xuanmeng Qi, Shinya Yoshida, Shuji Tanaka
2. 発表標題 Development of Sputter Deposition Technology of Sm-Doped Pb(Mg ₁ /3Nb ₂ /3) ₀₃ -PbTiO ₃ Epitaxial Thin Film with Pure Perovskite Phase on Si for Piezoelectric MEMS Actuator
3. 学会等名 圧電材料・デバイスシンポジウム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Xuanmeng Qi, Shinya Yoshida, Shuji Tanaka
2. 発表標題 Fabrication of Pure-Perovskite-Phase Sm-Doped Pb(Mg1/3,Nb2/3)O3-PbTiO3 Epitaxial Thin Film on Si by Magnetron Sputter using Powder Target
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 勝又 優, 吉田 慎哉, 田中 秀治
2. 発表標題 チタン酸ジルコン酸鉛 (PZT) 系エピ・ポリ薄膜のスパッタ成膜と破壊靱性の調査
3. 学会等名 第12回「マイクロ・ナノ工学シンポジウム」
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関